

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-133288

(43)Date of publication of application : 12.05.2000

(51)Int.Cl. H01M 8/02

(21)Application number : 10-307199

(71)Applicant : NOK CORP

(22)Date of filing : 28.10.1998

(72)Inventor : SENDA KAZUHISA
NAGAI OSAMU
WAKAMATSU SHIGEO
ANDO OSAMU
FUJIMOTO TADASHI

(54) CARBON MATERIAL FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To make a seal part thin and lower surface pressure by forming a gasket made of a liquid-state rubber cured material having specified hardness in a worked groove on the surface of a plane plate carbon material.

SOLUTION: A plane plate carbon material has an about 0.05-3 mm-thick and about 2-5 mm-wide groove worked along the periphery, and a gasket having a projection of specified shape is formed in the groove. The gasket is formed with a liquid-state rubber cured material having a hardness (specified in JIS A) of 60 or lower. The liquid-state rubber cured material is formed by curing liquid-state silicone rubber for example. Curing is performed in such a way that a specified mold is used in a part where a groove is formed of a carbon material, liquid-state rubber is poured in the mold, then injection molding is conducted. The carbon material in which the liquid-state rubber cured material is formed in the worked groove is combined with a current collecting electrode (a separator), an ion exchange membrane, and a reaction electrode to form a cell of a fuel cell.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-133288

(P2000-133288A)

(43) 公開日 平成12年5月12日 (2000.5.12)

(51) Int.Cl.⁷

H 0 1 M 8/02

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02

サーチワード (参考)

S 5 H 0 2 6

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平10-307199

(22) 出願日 平成10年10月28日 (1998.10.28)

(71) 出願人 000004385

エヌオーケー株式会社

東京都港区芝大門1丁目12番15号

(72) 発明者 仙田 和久

神奈川県藤沢市辻堂新町4-3-1 エヌ
オーケー株式会社内

(72) 発明者 長井 修

神奈川県藤沢市辻堂新町4-3-1 エヌ
オーケー株式会社内

(74) 代理人 100066005

弁理士 吉田 俊夫

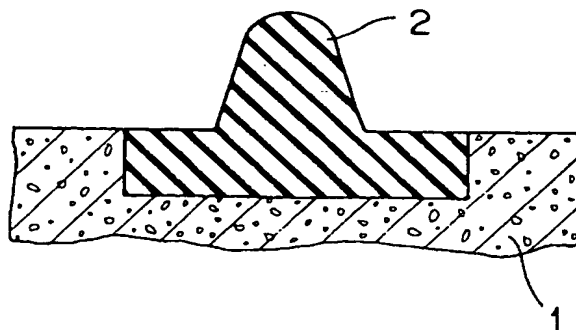
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 燃料電池用カーボン材

(57) 【要約】

【課題】 集電極、イオン交換膜、反応電極等と組合せて用いられる平面プレート状カーボン材であって、それを用いてセルを構成したとき、シール部の薄肉化、低面圧化等を達成させ得るものを提供する。

【解決手段】 平面プレート状カーボン材の表面に施された加工溝に硬さ(JIS A)60以下の液状ゴム硬化物よりなるガスケットを形成させた燃料電池用カーボン材。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 平面プレート状多孔質カーボン材の表面に施された加工溝に硬さ(JIS A)60以下の液状ゴム硬化物よりなるガスケットを形成せしめてなる燃料電池用カーボン材。

【請求項2】 液状ゴム硬化物の形成が射出成形によって行われた請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項3】 平面プレート状カーボン材が集電極(セパレータ)である請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項4】 平面プレート状カーボン材がイオン交換膜である請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項5】 平面プレート状カーボン材が膜固定反応電極である請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項6】 請求項3、4または5記載の燃料電池用カーボン材を組合せて構成された燃料電池セル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用カーボン材に関する。更に詳しくは、平面プレート状多孔質カーボン材の表面にガスケットを形成させた燃料電池用カーボン材に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池の集電極(セパレータ)、イオン交換膜、その膜に固定された反応電極等は平面プレート状多孔質カーボン材からなっており、それらを組合せて燃料電池セルが形成されている。ここで、多孔質カーボン材としては、カーボンの他にグラファイト等も用いられる。

【0003】かかる燃料電池用セルおよびその各構成要素間のシールに関しては、ガスケットを用いるもの(特開平9-231987号公報、同7-263004号公報、同7-226220号公報、同7-153480号公報)やゴム板に発泡スポンジ層を配してガスケットとして利用するもの(同7-312223号公報)等があるが、これらはいずれもシール部の薄肉化、組立性の向上、位置ずれの防止、低面圧化、面圧の均一化等の課題の解決を図ったものではない。すなわち、通常の別体型ガスケットを用いた場合には、シールの薄肉化、組立性、位置ずれ等を十分満足させることができないのが実情である。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、集電極、イオン交換膜、膜固定反応電極等の平面プレート状多孔質カーボン材であって、それを用いてセルを構成したとき、シール部の薄肉化、低面圧化等を達成させ得るものを提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】かかる本発明の目的は、平面プレート状多孔質カーボン材の表面に施された加工溝に硬さ(JIS A)60以下の液状ゴム硬化物よりなるガス

ケットを形成させた燃料電池用カーボン材によって達成される。

【0006】平面プレート状多孔質カーボン材、例えばその中心部に穿孔部が設けられた平面プレート状多孔質カーボン材には、その周縁、一般には外周縁に沿って、深さが約0.05~3mm、好ましくは約0.1~1mm程度、幅が約1~10mm、好ましくは約2~5mm程度の寸法で溝加工が施されており、そこに所望の形状の凸部を有するガスケットが形成されている。

【0007】ガスケットは、硬さ(JIS A)が60以下、好ましくは40~5の液状ゴム硬化物から形成される。かかる硬さを有する液状ゴム硬化物は、未硬化時の粘度が約500Pa・s以下、好ましくは約300~30Pa・s(25℃)の液状シリコーンゴム、10⁵ポアズ以下、好ましくは10⁴ポアズ以下(室温)の液状パーフルオロゴム、更には液状ニトリルゴム、液状EPDM、液状フッ素ゴム等を硬化させることによって形成される。

【0008】これらの液状ゴムとしては、市販品をそのまま用いることができ、例えば液状シリコーンゴムとしては信越化学製品KE1950-20(A・B)、KE1950-10(A・B)、X-70-706BK等が、また液状パーフルオロゴムとしては、同社製品SIFEL3500(熱硬化性2液混合タイプ)等が用いられる。

【0009】液状ゴムの硬化は、平面プレート状多孔質カーボン材の加工溝対応部分に、ガスケット形状形成凸部に対応する凹部を有する金型を用い、そこに液状ゴムを注入し、射出成形することによって行われる。その成形圧は、液状の原料が用いられているため、約100~300Kg/cm²程度と低くて済む。

【0010】このようにして液状ゴム硬化物をガスケットとして加工溝部分に形成させた平板プレート状多孔質カーボン材は、集電極(セパレータ)、イオン交換膜、その膜に固定された反応電極等を組合せて燃料電池セルを形成させる。ガスケット部分は、集電極とイオン交換膜との間、イオン交換膜を挟着した集電極同志の端部などを有効にシールする。

【0011】

【発明の効果】本発明に係るガスケットを一体に形成させた平板プレート状多孔質カーボン材は、それを組立てて燃料電池用セルとしたとき、シール性、リップ接触性などにすぐれ、また低面圧、換言すれば位置ずれ防止性の点でもすぐれたものを与えることができる。

【0012】

【実施例】次に、実施例について本発明を説明する。

【0013】実施例1

燃料電池用セパレータとして適した形状および厚み(2mm)に切削加工した樹脂含浸タイプのカーボン材(東洋炭素製品IKC-33)の表面へ溝加工(幅3.0mm、深さ0.3mm)を施し、その溝加工部分に所定の形状を施した金型を用いて液状シリコーンゴムを射出成形し(成形圧200Kg/c

m²)、カーボン材表面にシリコンゴムが連続して接合した状態のガスケット形成カーボン材A～Dを得た。
 ガスケット形成カーボン材A：標準形状でリップがそのまま下方に圧縮されるガスケットを有するカーボン材
 ガスケット形成カーボン材B：圧縮時にリップを強制的に一方側に倒れるようにしたガスケットを有するカーボン材

ガスケット形成カーボン材C：リップを平行に2つ設け、面圧を高めずにシール性を確保したガスケットを有するカーボン材

ガスケット形成カーボン材D：二重リップでそれぞれのリップを強制的に倒れる方向を決めたガスケットを有するカーボン材

【0014】ここで用いられた液状シリコンゴムは、未硬化時の粘度が150Pa・s(25℃)の半透明体で、硬化後硬さ(JIS A)20の値を与える信越化学製品KE1950-20(A・B)であり、射出成形は150℃の金型温度に60秒間保持することによって行われた。

【0015】実施例2

実施例1において、液状シリコンゴムとして未硬化時の粘度が60Pa・s(25℃)の半透明体で、硬化後硬さ(JIS A)13の値を与える信越化学製品KE-1950-10(A・B)が用いられた。

【0016】実施例3

実施例1において、液状シリコンゴムとして未硬化時の粘度が30Pa・s(25℃)の半透明体で、硬化後硬さ(JIS A)35の値を与える信越化学製品X-70-706BKが用いられた。

【0017】比較例1

実施例1において、液状シリコンゴムとして未硬化時の粘度が750Pa・s(25℃)の半透明体で、硬化後硬さ(JIS A)68の値を与える信越化学製品KE1950-70(A・B)が用いられた。

【0018】上記各実施例および比較例1で用いられた硬化シリコンゴム(150℃、10分間のプレス架橋 - 200℃、4時間のポスト架橋)の硬さ以外の性状は、次の表1に示される。

表1

液状シリコンゴム	KE1950-20	KE1950-10	X-70-706	KE1950-70
[硬化物]				
引張強さ (MPa)	6.4	3.9	5.9	7.8
引裂強さ (KN/m)	30	13	10	49
伸び (%)	900	700	400	350
比重 (-)	1.10	1.08	1.88	1.15

【0019】以上の各実施例で得られたガスケット形成カーボン材A～Dについて、次の各項目の測定を行ない、表2に示されるような結果を得た。

シール性：ガスケットのゴムが連続して接合した面に対して、平面カーボンプレートを相手材として、25%のゴム圧縮率で、Heリーク試験(2Kgf/cm²)を行ない、漏れの有無を調べ、漏れなしを○、不安定を△、漏れありを×と評価

面圧(変位)：ガスケットのゴムが連続して接合した面

に対して、平面カーボンプレートを相手材として40%圧縮し、そのときシールが受ける面圧をオートグラフで測定し、単位長さ当りの荷重が2N/mm以下を○、2～5N/mmを△、5N/mm以上を×と評価

リップ接触：ガスケットのゴムが連続して接合した面に対して、透明のガラス板を25～40%の圧縮率で接触させ、ガラス面側からシール接触部を観察し、良好を○、やや偏りありを△、偏りありを×と評価

表2

評価項目	実施例1	実施例2	実施例3	比較例1
[ガスケットA形成カーボン材]				
シール性	○	○	○	○
面圧(変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	△	○	○
[ガスケットB形成カーボン材]				
シール性	○	○	○	○
面圧(変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	○	○	○
[ガスケットC形成カーボン材]				
シール性	○	○	○	○
面圧(変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	○	○	○
[ガスケットD形成カーボン材]				

シール性
面圧(変位)
リップ接触

○ ○ ○ ○
○ ○ ○ △
○ ○ ○ ○

【0020】比較例2

黒色粘土状のフッ素ゴム(デュポン社製品E60CにMTカーボンブラック、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ および MgO を配合したもの)製の断面円形ガasketを、カーボンプレートとカーボンプレートとの間に挟着したものについて、前記と同様の評価を行ない、シール性は○、面圧(変位)は×、リップ接触は△という結果を得た。

【0021】比較例3

黒色粘土状の発泡ニトリルゴム製の断面円形ガasketを、カーボンプレートとカーボンプレートとの間に挟着したものについて、前記と同様の評価を行ない、シール性は△、面圧(変位)は△、リップ接触は△という結果を得た。

【0022】なお、比較例2～3で用いられたフッ素ゴムまたは発泡ニトリルゴムの硬化後の特性は、次の表3に示される。

表3

硬化後特性		フッ素ゴム	発泡ニトリルゴム
硬さ	(JIS A)	70	35
引張強さ	(MPa)	14.5	1.4
引裂強さ	(KN/m)	26	-
伸び	(%)	230	160
比重	(-)	1.85	0.82

【図面の簡単な説明】

【図1】ガasket Aを設けたカーボン材の部分断面図である。

【図2】ガasket Bを設けたカーボン材の部分断面図である。

【図3】ガasket Cを設けたカーボン材の部分断面図

である。

【図4】ガasket Dを設けたカーボン材の部分断面図である。

【符号の説明】

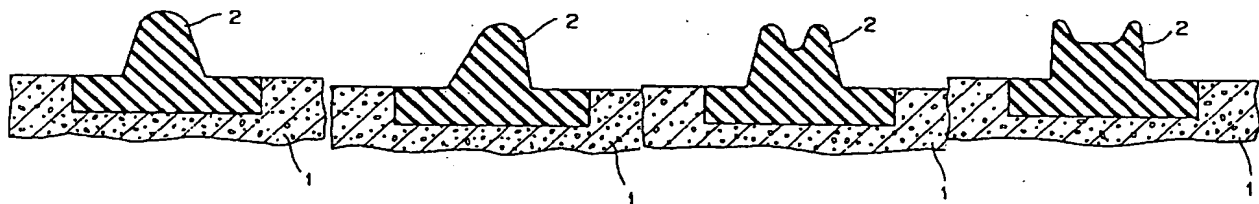
- 1 カーボン材
2 ガasket

【図1】

【図2】

【図3】

【図4】



【手続補正書】

【提出日】平成11年12月9日(1999.12.9)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正内容】

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池用カーボン材

【特許請求の範囲】

【請求項1】平面プレート状カーボン材の表面に施された加工溝に硬さ(JIS A)60以下の液状ゴム硬化物よりなるガasketを形成せしめてなる燃料電池用カーボン材。

【請求項2】液状ゴム硬化物の形成が射出成形によって行われた請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項3】平面プレート状カーボン材が集電極(セパレータ)と組合せて用いられる請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項4】平面プレート状カーボン材がイオン交換膜と組合せて用いられる請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項5】平面プレート状カーボン材が反応電極と組合せて用いられる請求項1記載の燃料電池用カーボン材。

【請求項6】請求項3、4または5記載の燃料電池用カーボン材を組合せて構成された燃料電池セル。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、燃料電池用カーボン材に関する。更に詳しくは、平面プレート状カーボン材の表面にガスケットを形成させた燃料電池用カーボン材に関する。

【0002】

【従来の技術】燃料電池の集電極(セパレータ)、イオン交換膜、反応電極等は平面プレート状カーボン材からなっており、それらを組合せて燃料電池セルが形成されている。ここで、カーボン材としては、カーボンの他にグラファイト等も用いられる。

【0003】かかる燃料電池用セルおよびその各構成要素間のシールに関しては、ガスケットを用いるもの(特開平9-231987号公報、同7-263004号公報、同7-226220号公報、同7-153480号公報)やゴム板に発泡スポンジ層を配してガスケットとして利用するもの(同7-312223号公報)等があるが、これらはいずれもシール部の薄肉化、組立性の向上、位置ずれの防止、低面圧化、面圧の均一化等の課題の解決を図ったものではない。すなわち、通常の別体型ガスケットを用いた場合には、シールの薄肉化、組立性、位置ずれ等を十分満足させることができないのが実情である。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、集電極、イオン交換膜、反応電極等と組合せて用いられる平面プレート状カーボン材であって、それを用いてセルを構成したとき、シール部の薄肉化、低面圧化等を達成させ得るものを提供することにある。

【0005】

【課題を解決するための手段】かかる本発明の目的は、平面プレート状カーボン材の表面に施された加工溝に硬さ(JIS A)60以下の液状ゴム硬化物よりなるガスケットを形成させた燃料電池用カーボン材によって達成される。

【0006】平面プレート状カーボン材、例えばその中心部に穿孔部が設けられた平面プレート状カーボン材には、その周縁、一般には外周縁に沿って、深さが約0.05~3mm、好ましくは約0.1~1mm程度、幅が約1~10mm、好ましくは約2~5mm程度の寸法で溝加工が施されており、そこに所望の形状の凸部を有するガスケットが形成されている。

【0007】ガスケットは、硬さ(JIS A)が60以下、好ましくは40~5の液状ゴム硬化物から形成される。かかる硬さを有する液状ゴム硬化物は、未硬化時の粘度が約500Pa・s以下、好ましくは約300~30Pa・s(25℃)の液状シリコンゴム、 10^5 ポアズ以下、好ましくは 10^4 ポアズ以下(室温)の液状パーフルオロゴム、更には液状ニトリルゴム、液状EPDM、液状フッ素ゴム等を硬化させることによって形成される。

【0008】これらの液状ゴムとしては、市販品をその

まま用いることができ、例えば液状シリコンゴムとしては信越化学製品KE1950-20(A・B)、KE1950-10(A・B)、X-70-706BK等が、また液状パーフルオロゴムとしては、同社製品SIFEL3500(熱硬化性2液混合タイプ)等が用いられる。

【0009】液状ゴムの硬化は、平面プレート状カーボン材の加工溝対応部分に、ガスケット形状形成凸部に対応する凹部を有する金型を用い、そこに液状ゴムを注入し、射出成形することによって行われる。その成形圧は、液状の原料が用いられているため、約100~300Kg/cm²程度と低くて済む。

【0010】このようにして液状ゴム硬化物をガスケットとして加工溝部分に形成させた平板プレート状カーボン材は、集電極(セパレータ)、イオン交換膜、反応電極等を組合せて燃料電池セルを形成させる。ガスケット部分は、集電極とイオン交換膜との間、イオン交換膜を挟着した集電極同志の端部などを有効にシールする。

【0011】

【発明の効果】本発明に係るガスケットを一体に形成させた平板プレート状カーボン材は、それを組立てて燃料電池用セルとしたとき、シール性、リップ接触性などにすぐれ、また低面圧、換言すれば位置ずれ防止性の点でもすぐれたものを与えることができる。

【0012】

【実施例】次に、実施例について本発明を説明する。

【0013】実施例1

燃料電池用セパレータとして適した形状および厚み(2mm)に切削加工した樹脂含浸タイプの非多孔質カーボン材(東洋炭素製品IKC-33)の表面へ溝加工(幅3.0mm、深さ0.3mm)を施し、その溝加工部分に所定の形状を施した金型を用いて液状シリコンゴムを射出成形し(成形圧200Kg/cm²)、カーボン材表面にシリコンゴムが連続して接合した状態のガスケット形成カーボン材A~Dを得た。ガスケット形成カーボン材A:標準形状でリップがそのまま下方に圧縮されるガスケットを有するカーボン材。ガスケット形成カーボン材B:圧縮時にリップを強制的に一方側に倒れるようにしたガスケットを有するカーボン材。

ガスケット形成カーボン材C:リップを平行に2つ設け、面圧を高めずにシール性を確保したガスケットを有するカーボン材。

ガスケット形成カーボン材D:二重リップでそれぞれのリップを強制的に倒れる方向を決めたガスケットを有するカーボン材。

【0014】ここで用いられた液状シリコンゴムは、未硬化時の粘度が150Pa・s(25℃)の半透明体で、硬化後硬さ(JIS A)20の値を与える信越化学製品KE1950-20(A・B)であり、射出成形は150℃の金型温度に60秒間保持することによって行われた。

【0015】実施例2

実施例 1 において、液状シリコンゴムとして未硬化時の粘度が $60\text{Pa}\cdot\text{s}$ (25℃) の半透明体で、硬化後硬さ (JIS A) 13 の値を与える信越化学製品 KE-1950-10 (A・B) が用いられた。

【0016】実施例 3

実施例 1 において、液状シリコンゴムとして未硬化時の粘度が $30\text{Pa}\cdot\text{s}$ (25℃) の半透明体で、硬化後硬さ (JIS A) 35 の値を与える信越化学製品 X-70-706BK が用いられた。

【0017】比較例 1

実施例 1 において、液状シリコンゴムとして未硬化時の粘度が $750\text{Pa}\cdot\text{s}$ (25℃) の半透明体で、硬化後硬さ (JIS A) 68 の値を与える信越化学製品 KE1950-70 (A・B) が用いられた。

【0018】上記各実施例および比較例 1 で用いられた硬化シリコンゴム (150℃、10 分間のプレス架橋 - 200℃、4 時間のポスト架橋) の硬さ以外の性状は、次の表 1 に示される。

表 1

液状シリコンゴム	KE1950-20	KE1950-10	X-70-706	KE1950-70
【硬化物】				
引張強さ (MPa)	6.4	3.9	5.9	7.8
引裂強さ (KN/m)	30	13	10	49
伸び (%)	900	700	400	350
比重 (-)	1.10	1.08	1.88	1.15

【0019】以上の各実施例で得られたガスケット形成カーボン材 A～D について、次の各項目の測定を行ない、表 2 に示されるような結果を得た。

シール性：ガスケットのゴムが連続して接合した面に対して、平面カーボンプレートを相手材として、25% のゴム圧縮率で、He リーク試験 ($2\text{Kg}/\text{cm}^2$) を行ない、漏れの有無を調べ、漏れなしを○、不安定を△、漏れありを×と評価

面圧 (変位)：ガスケットのゴムが連続して接合した面に

対して、平面カーボンプレートを相手材として 40% 圧縮し、そのときシールが受ける面圧をオートグラフで測定し、単位長さ当りの荷重が $2\text{N}/\text{mm}$ 以下を○、 $2\sim 5\text{N}/\text{mm}$ を△、 $5\text{N}/\text{mm}$ 以上を×と評価

リップ接触：ガスケットのゴムが連続して接合した面に対して、透明のガラス板を 25～40% の圧縮率で接触させ、ガラス面側からシール接触部を観察し、良好を○、やや偏りありを△、偏りありを×と評価

表 2

評価項目	実施例 1	実施例 2	実施例 3	比較例 1
【ガスケット A 形成カーボン材】				
シール性	○	○	○	○
面圧 (変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	△	○	○
【ガスケット B 形成カーボン材】				
シール性	○	○	○	○
面圧 (変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	○	○	○
【ガスケット C 形成カーボン材】				
シール性	○	○	○	○
面圧 (変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	○	○	○
【ガスケット D 形成カーボン材】				
シール性	○	○	○	○
面圧 (変位)	○	○	○	△
リップ接触	○	○	○	○

【0020】比較例 2

黒色粘土状のフッ素ゴム (デュポン社製品 E60C) に MT カーボンブラック、 $\text{Ca}(\text{OH})_2$ および MgO を配合したもの製の断面円形ガスケットを、カーボンプレートとカーボンプレートとの間に挟着したものについて、前記と同様の評価を行ない、シール性は○、面圧 (変位) は×、リップ接触は△という結果を得た。

【0021】比較例 3

黒色粘土状の発泡ニトリルゴム製の断面円形ガスケットを、カーボンプレートとカーボンプレートとの間に挟着したものについて、前記と同様の評価を行ない、シール性は△、面圧 (変位) は△、リップ接触は△という結果を得た。

【0022】なお、比較例 2～3 で用いられたフッ素ゴ

ムまたは発泡ニトリルゴムの硬化後の特性は、次の表 3 に示される。

表 3

硬化後特性		フッ素ゴム	発泡ニトリルゴム
硬さ	(JIS A)	70	35
引張強さ	(MPa)	14.5	1.4
引裂強さ	(KN/m)	26	-
伸び	(%)	230	160
比重	(-)	1.85	0.82

【図面の簡単な説明】

【図 1】 ガスケット A を設けたカーボン材の部分断面図である。

【図 2】 ガスケット B を設けたカーボン材の部分断面図である。

【図 3】 ガスケット C を設けたカーボン材の部分断面図

である。

【図 4】 ガスケット D を設けたカーボン材の部分断面図である。

【符号の説明】

1 カーボン材

2 ガスケット

フロントページの続き

(72) 発明者 若松 重夫
神奈川県藤沢市辻堂新町 4-3-1 エヌ
オーケー株式会社内

(72) 発明者 安藤 理
神奈川県藤沢市辻堂新町 4-3-1 エヌ
オーケー株式会社内

(72) 発明者 藤本 正
神奈川県藤沢市辻堂新町 4-3-1 エヌ
オーケー株式会社内

Fターム(参考) 5H026 AA02 CC03 CX05 EE05 EE18
HH00